

(19)日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開2000-273418

(P2000-273418A)

(43)公開日 平成12年10月3日 (2000.10.3)

(51)Int.Cl.<sup>7</sup>

C 0 9 J 7/02  
B 3 2 B 27/00  
C 0 8 J 5/18  
C 0 8 L 83/06  
C 0 9 J 9/00

識別記号

F I

C 0 9 J 7/02  
B 3 2 B 27/00  
C 0 8 J 5/18  
C 0 8 L 83/06  
C 0 9 J 9/00

テマコード<sup>8</sup>(参考)  
Z 4 F 0 7 1  
M 4 F 1 0 0  
4 J 0 0 2  
4 J 0 0 4  
4 J 0 4 0

審査請求 未請求 請求項の数 4 OL (全 6 頁) 最終頁に続く

(21)出願番号 特願平11-81862

(71)出願人 000002174

積水化学工業株式会社

大阪府大阪市北区西天満2丁目4番4号

(22)出願日 平成11年3月25日 (1999.3.25)

(72)発明者 松田 正則

京都市南区上島羽上調子町2-2 積水化  
学工業株式会社内

(72)発明者 中壽賀 章

京都市南区上島羽上調子町2-2 積水化  
学工業株式会社内

最終頁に続く

(54)【発明の名称】 光重合性組成物、湿気硬化型粘接着性シート、及び部材の接合方法

(57)【要約】

【課題】 初期粘着力及び形状保持性に優れているとともに、特にコンクリートやケイ酸カルシウム板等の無機材や木材等に対して十分な接着強度を発現することが可能で、耐水性や耐久性を有する光重合性組成物、この組成物を用いてなる湿気硬化型粘接着性シート及び部材の接合方法。

【解決手段】 (a) 分子中に2個以上のアルコキシリル基を有する架橋性ポリマー、(b) 分子中に(メタ)アクリル基を2個以上有する(メタ)アクリルモノマー、(c) アミノ基を有するシランカップリング剤、及び(d) 光重合性開始剤が含有されてなることを特徴とする光重合性組成物、この組成物を用いた湿気硬化型粘接着性シート、及び部材の接合方法。

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 (a) 分子中に2個以上のアルコキシリル基を有する架橋性ポリマー、(b) 分子中に(メタ)アクリル基を2個以上有する(メタ)アクリルモノマー、(c) アミノ基を有するシランカップリング剤、及び(d) 光重合性開始剤が含有されてなることを特徴とする光重合性組成物。

【請求項2】 請求項1記載の光重合性組成物を、光照射することにより重合して得られる、実質的に未反応状態のアルコキシリル基を有することを特徴とする湿気硬化型粘接着性シート。

【請求項3】 請求項1記載の光重合性組成物が光重合されて、基材上に、実質的に未反応状態のアルコキシリル基を有する粘接着剤層が形成されてなることを特徴とする湿気硬化型粘接着性シート。

【請求項4】 請求項2記載の湿気硬化型粘接着性シートを被着体に貼り合わせ接合部材を貼り合わせた後、雰囲気中の湿気によって前記湿気硬化型粘接着性シートを硬化させる工程を包含することを特徴とする部材の接合方法。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、光重合することにより、常態は粘着性であるが、特にコンクリートやケイ酸カルシウム板等の無機材や木材の接着・シーリングに用いて好適な湿気硬化型粘接着剤を供し得る光重合性組成物、及びこの組成物から得られる湿気硬化型粘接着性シート、並びに部材の接合方法に関する。

## 【0002】

【従来の技術】 従来より、様々な分野での接着固定において、高い初期粘着力と十分な経時接着力の両方を有する粘接着剤及びその接合方法の出現が望まれており、最近では、湿気硬化性の接着剤や粘着テープが利用されている。この湿気硬化性の粘着テープとしては、例えば、特開昭63-61076号公報に、アルコキシリル基を有するアクリルポリマーとアルコキシリル基を有するポリエーテルポリマーとを配合したシーリング材が開示されている。この様な湿気硬化性の接着剤やシーリング材は、粘性な液状組成物として被着体に塗布するために、無機材や木材のような凹凸の表面を有する被着体の接合や隙間のシーリングに適しているため多用されている。

【0003】 しかしながら、この材料では液状であるために部材を接合した際に接着剤がサイドから滲み出したり、部材の圧着により接着剤層の厚みが薄くなってしまって硬化後も剥離力が発現できないという問題があった。また、硬化に長時間を要するため、部材を接合した直後に次工程での処理を行おうとすると接合部材がずれたり剥がれたりするという問題もあった。

【0004】 この様な問題を解決するために、特開平9

-137137号公報には、アクリレートモノマーの他に、カルボキシル基含有ビニルモノマーとアルコキシリル基を2個以上有する架橋性ポリマーを含ませた光重合性組成物を基材に塗工し光重合した粘着テープが開示され、この公報の記載によれば、初期粘着力が高いとともに、経時により湿気硬化して無機材や木材などに強力な接着力を發揮し得る粘着テープが得られたとされている。

## 【0005】

【発明が解決しようとする課題】 しかしながら、上記公報記載の技術において、確かに光重合性組成物の光重合により、液状粘着剤に起因する滲み出し等の問題点は解決されるものの、本発明者等の検討によれば、湿気硬化後の無機材や木材などへの接着力の点で更に改善を必要とするものであった。

【0006】 本発明は、上記従来の湿気硬化型粘接着剤の分野における問題点に鑑みて、初期粘着力及び形状保持性に優れているとともに、特にコンクリートやケイ酸カルシウム板等の無機材や木材等に対して十分な接着強度を発現することが可能で、耐水性や耐久性を有する湿気硬化型粘接着剤を、光重合により供し得る光重合性組成物、及びこの組成物を用いてなる湿気硬化型粘接着性シート、並びに部材の接合方法を提供することを目的とする。

## 【0007】

【課題を解決するための手段】 上記目的を達成するために、請求項1記載の本発明に係る光重合性粘接着性組成物は、(a) 分子中に2個以上のアルコキシリル基を有する架橋性ポリマー、(b) 分子中に(メタ)アクリル基を2個以上有する(メタ)アクリルモノマー、(c) アミノ基を有するシランカップリング剤、及び(d) 光重合性開始剤が含有されてなることを特徴とする。また、請求項2記載の本発明に係る湿気硬化型粘接着性シートは、請求項1記載の光重合性組成物を、光照射することにより重合して得られる、実質的に未反応状態のアルコキシリル基を有することを特徴とする。

【0008】 また、請求項3記載の本発明に係る湿気硬化型粘接着性シートは、請求項1記載の光重合性組成物が光重合されて、基材上に、実質的に未反応状態のアルコキシリル基を有する粘接着剤層が形成されてなることを特徴とする。更に、請求項4記載の本発明に係る部材の接合方法は、請求項2記載の湿気硬化型粘接着シートを被着体に貼り合わせ接合部材を貼り合わせた後、雰囲気中の湿気によって前記湿気硬化型粘接着シートを硬化させる工程を包含することを特徴とする。

【0009】 以下、本発明を更に詳細に説明する。尚、本明細書において、例えば、「(メタ)アクリル基」とは「メタクリル基又はアクリル基」を表示するものとする。請求項1記載の光重合性粘接着性組成物には、分子中に2個以上のアルコキシリル基を有する架橋性ポリ

マー (a) が含有される。この架橋性ポリマー (a) はポリエーテル鎖を主鎖とするもので、例えば、アクリルポリマーの末端もしくは側鎖にアルコキシシリル基を有するもの、ポリエーテルの末端にアルコキシシリル基を有するもの、ポリエステルの末端にアルコキシシリル基を有するもの、ポリカーボネートの末端にアルコキシシリル基を有するものが挙げられる。

【0010】市販品としては、例えば、「カネカMSポリマー20A」、「カネカMSポリマー#300シリーズ」、「カネカサイリル5A01」(以上、全て鐘淵化學工業社製)等が挙げられる。この架橋性ポリマー

(a) 中のアルコキシシリル基が、水分や湿気により加水分解されて架橋し、高い接着強度を得ることができると共に、例えば、コンクリート壁等の無機質表面に接着すると、無機質表面に存在するアルミニウム、シリコン、鉄等の金属元素との縮合反応により「Si-O-M」結合を形成し、界面の接着強度を向上させることができる。

【0011】上記湿気硬化型光重合性粘接着性組成物には、アミノ基を有するシランカップリング剤 (c) が含有されており、このために無機材や木材との接着力が高く耐水性を発現することとなり、また、分子中に(メタ)アクリル基を2個以上有する(メタ)アクリルモノマー (b) が含有されているために、光重合においても高い凝集力を発現できる。分子中に(メタ)アクリル基を2個以上有する(メタ)アクリルモノマー (b) としては、ウレタンアクリレート、ポリエステルアクリレート、ポリエーテルアクリレート、ポリアクリレートにラジカル重合性の不飽和結合をグラフトしたビニル基グラフトアクリレートが挙げられる。

【0012】本発明の光重合性組成物において、(メタ)アクリル基を有する(メタ)アクリルモノマーとしては、分子中に(メタ)アクリル基を2個以上有する(メタ)アクリレートモノマー (b) の他、分子中に(メタ)アクリル基を1個有する(メタ)アクリレートモノマーが適宜量用いられても良く、好ましくは、両者の合計量中、上記 (b) の割合が50~100重量%とされる。

【0013】またアミノ基を有するシランカップリング剤 (c) としては、好ましくは、活性アミノ基を有するアルコキシシラン化合物が用いられ、例えば、N-(2-アミノエチル)3-アミノプロピルメチルジメトキシシラン等の2官能シランカップリング剤、N-(2-アミノエチル)3-アミノプロピルメチルトリメトキシシラン等の3官能シランカップリング剤、また、分子内のアミノ基が1級、2級、3級の化合物や多アミノ基数の化合物、アルコキシシラン部がメトキシ以外である化合物等が挙げられる。

【0014】上記光重合性開始剤 (d) としては、光ラジカル重合性開始剤が好ましく用いられ、例えば、4-

(2-ヒドロキシエトキシ)フェニル(2-ヒドロキシ-2-プロピル)ケトン [チバガイギー社製、商品名「ダロキュア-2959」]、2-ヒドロキシ-2,2-ジメチルアセトフェノン [チバガイギー社製、商品名「ダロキュア-1173」]、1-ヒドロキシシクロヘキシルフェニルケトン [チバガイギー社製、商品名「イルガキュア-184」]、メトキシアセトフェノン、2,2-ジメトキシ-2-フェニルアセトフェノン [チバガイギー社製、商品名「イルガキュア-651」] 等のアセトフェノン系開始剤、ベンゾインエチルエーテル、ベンゾインプロピルエーテル等のベンゾインエーテル系開始剤、ベンジルジメチルケタール等のケタール系開始剤、その他、ハロゲン化ケトン、アシルホスフィンオキシド、アシルホスフィナート、2,4,6-トリメチルベンゾイルジフェニルホスフィンオキサイド (BASF社製、商品名「ルシリンTPO」) 等が挙げられ、これらは単独で使用されてもよいし、また2種類以上併用してもよい。

【0015】上記光ラジカル重合性開始剤の内、波長420nmにおける分子吸光係数が100以上であるものが、光重合の反応効率の点で好ましい。上記各成分の配合は、分子中に2個以上のアルコキシシリル基を有する架橋性ポリマー (a) を100重量部とした場合に、分子中に(メタ)アクリル基を有する(メタ)アクリレートモノマー (b) を10~100重量部、分子中にアミノ基を有する分子量2000以下のシランカップリング剤 (c) を0.1~10重量部、光ラジカル重合性開始剤 (d) を0.01~10重量部とするのが好ましい。

【0016】更に、本発明の光重合性組成物には、シラノール縮合触媒、充填剤や增量剤、連鎖移動剤、アミノ基以外の官能基を有するシランカップリング剤、粘着付与剤、反応性の官能基を有するモノマーを添加することができる。上記シラノール縮合触媒としては、従来公知のものが使用可能で、例えば、ジブチル錫ジラウレート、ジブチル錫オキサイド、ジブチル錫ジアセテート、ジブチル錫フタレート、ビス(ジブチル錫ラウリン酸)オキサイド、ジブチル錫ビスマセチルアセトナート、ジブチル錫ビスマス(モノエステルマレート)、オクチル酸錫、ジブチル錫オクトエート、ジオクチル錫オキサイド等の錫系触媒、テトラ-n-ブトキシチタネート、テトライソプロポキシチタネート等のチタネート化合物、ジブチルアミン-2-エチルヘキソエート等のアミン塩や、他の酸性触媒等が挙げられ、これらは単独でまたは2種以上を併用して使用することが出来る。

【0017】上記錫系触媒の配合は、分子中に2個以上のアルコキシシリル基を有する架橋性ポリマー (a) を100重量部とした場合に、分子中に(メタ)アクリル基を有する(メタ)アクリレートモノマー (b) を10~100重量部、分子中にアミノ基を有する分子量2000以下のシランカップリング剤 (c) を0.1~10重量部とするのが好ましい。

重量部、光ラジカル重合性開始剤 (d) を0.01~10重量部、錫系触媒 (e) を0.01~5重量部とするのが好ましい。

【0018】上記充填剤としては、例えば、ガラスバルーン、アルミナバルーン、シラスバルーン、フライアッシュバルーン等の無機系中空微粒子、ガラスピーズ、シリカピーズ、シリカゲル、アルミナシリカ、フライアッシュ、合成雲母等の無機系微粒子、ケイソウ土、多孔質シリカ等の多孔質フィラー、ポリメタクリル酸メチル、アクリロニトリル-塩化ビニリデン共重合体、ポリスチレン、フェノール樹脂等からなる有機系中空微粒子、ポリメタクリル酸メチルピーズ、ポリスチレンピーズ、ナイロンピーズ、スチレンアクリルピーズ、ウレタンピーズ、シリコーンピーズ、ポリエチレンピーズ、ポリプロピレンピーズ、エチレン-酢酸ビニル共重合体のピーズ、ポリアクリル酸エチルのピーズ等の有機系微粒子、立方体状アルミナシリカ、ガラスフレーク、ガラス繊維、鎖状粘土鉱物等が挙げられ、これらは単独で使用されてもよいし、また2種類以上併用されてもよい。

【0019】上記光重合する際に、重合反応のばらつきを抑え、得られる共重合体の分子量を適切に調整する目的で、光重合性組成物中に連鎖移動剤が添加されてもよく、例えば、n-ドデシルメルカプタン、2-メルカプトエタノール、β-メルカプトプロピオン酸、β-メルカプトプロピオン酸オクチル、β-メルカプトプロピオン酸メトキシブチル、トリメチロールプロパントリス(β-チオプロピオネット)、チオグリコール酸ブチル、プロパンチオール類、ブタンチオール類、チオホスファイト類等のチオール化合物や四塩化炭素などのハログン化合物等が挙げられ、これらは単独で使用されてもよいし、また2種類以上併用されてもよい。

【0020】上記光重合性組成物中には、光重合性を阻害しない範囲で必要に応じて、粘着付与樹脂が添加されてもよく、例えば、C5系及びC9系水添石油樹脂、水添ロジン樹脂、水添ロジンエステル樹脂、水添テルペン樹脂、水添テルペンフェノール樹脂、水添クマロン・インデン樹脂、不均化ロジン樹脂、不均化ロジンエステル樹脂、重合ロジン樹脂、重合ロジンエステル樹脂等の不飽和結合の比較的少ない樹脂が挙げられ、これらは単独で使用されてもよいし、また2種類以上併用されてもよい。

【0021】また、上記粘着付与樹脂の添加により、分子量低下や重合速度低下といった重合阻害がある場合は、上記多官能性ビニルモノマーや上記連鎖移動剤の添加量を適宜調節する必要がある。

【0022】次に上記湿気硬化型粘接着性シートの製造プロセス条件に関して述べる。基本的なプロセスとしては、上述の光重合性組成物をロールコーティング等の塗工機を用いて剥離シート等の基材上に塗布し、その後、光照射して基材上で重合する方法が挙げられる。

【0023】上記光照射に使用可能なランプとしては、光波長400nm以下に発光分布を有するもの、例えば低圧水銀灯、中圧水銀灯、高圧水銀灯、超高压水銀灯、ケミカルランプ、ブラックライトランプ、マイクロウェーブ励起水銀灯、メタルハライドランプ等が挙げられ、光重合性開始剤の分解に有効な波長領域(通常330~400nm)の光を効率良く発光し、また、厚膜シートを効率よく重合できるという点などから、ケミカルランプが好ましく用いられる。

【0024】また、ランプの照射強度は、光重合性組成物により得られる共重合体の重合度を左右するため、目的とする製品の性能により適宜選択される。例えば、通常のアセトフェノン基を有する開裂型の光重合性開始剤の場合、上記照射強度は、低くなると酸素による重合阻害のために反応開始までの時間がばらつき、重合度の一定した重合物が得られにくくなり、また高くなると初期のラジカル発生量が多くなり、分子量が低下するために感圧接着性や凝集力と応力緩和性のバランスがとれにくくなるので、0.1~100mW/cm<sup>2</sup>の範囲が好ましい。

【0025】上記湿気硬化型粘接着性シートは、シリル基を有する架橋性ポリマー(a)を含有した組成物中に、分子中に(メタ)アクリル基を2個以上有する(メタ)アクリルモノマー(b)とアミノ基を有するシランカップリング剤(c)とを含有しているため、光重合後も、実質的に未反応状態のアルコキシリル基を有する粘接着剤層が形成されており、このため、湿気等によるシラノール基を介在した架橋が速かに進行するため、初期粘着力及び形状保持性に優れているとともに、特にコンクリートやケイ酸カルシウム板等の無機材や木材等の粗面に対しても十分な接着強度を発現することが可能で、耐水性や耐久性を有する接着剤層を形成し得る。

【0026】請求項3記載の部材の接合方法は、上記湿気硬化型粘接着性シートを被着体に貼り合わせ接合部材を貼り合わせた後、雰囲気中の湿気によって前記湿気硬化型粘接着性シートを硬化させる工程を包含するものであり、被着体もしくは接合部材としてコンクリートやケイ酸カルシウム板等の無機材や木材等を用いた場合に、特に効果的である。

【0027】以下、本発明の実施例について説明する。なお、以下の配合組成の数字は「重量部」を意味する。

#### 【0028】

##### 【実施例】(実施例1及び比較例1、2)

「光重合性組成物の調製」表1の配合組成に従って、ガラス瓶中に、(a)~(f)の各種ポリマー、モノマー、触媒等を加え、均一分散するまで攪拌混合した後、窒素ガスを充填して溶存酸素を除去し、光重合性組成物を調製した。

【0029】具体的には、架橋性ポリマー(a)として50変性シリコーンポリマー(鐘淵化学工業社製、商品名

「カネカMSポリマー303」)を、分子中にアクリル基を2個以上有するアクリルモノマー(b)として2官能ウレタンアクリレート(新中村化学工業社製、商品名「UA-340P」)を、アミノ基を有するシランカップリング剤(c)としてアミノシラン(チッソ社製、商品名「S320」)を、光重合性開始剤(d)として、2,4,6-トリメチルベンゾイルジフェニルホスフィンオキサイド(BASF社製、商品名「ルシリントPO」)と2-ヒドロキシ-2,2-ジメチルアセトフェノン(チバガイギー社製、商品名「ダロキュア-1173」)メルク社製とを、更に錫系触媒(e)としてビス(ジブチル錫ラウリン酸)オキサイド(三共有機合成社製、商品名「SB-65」)を用い、又、単官能アクリレート(f)としてブチルアクリレートを用いた。

【0030】「湿気硬化型粘着性シートの作製」上記光重合性組成物を片面離型処理された38μmの透明なポリエチレンテレフタレート(PET)フィルムの離型処理面上に塗工し、更に同一のPETフィルムで離型処理面が露出面と接触するようにカバーした後、ケミカルランプを用いて照射強度5mW/cm<sup>2</sup>の紫外線を15分\*20

\*間照射することにより、表1記載の厚み1.0±0.2mmの湿気硬化型粘着シートを得た。

【0031】「性能評価」

凝聚力の発現(テープ化)

紫外線を照射した後、片面の離型PETを剥がしたとき、上記粘着シートが凝聚破壊せずにPETフィルムから界面剥離する状態をもってテープ化ができたと評価した。

剥離強度

まず、上記湿気硬化型粘着シートを幅20mm×長さ20mmに裁断した後、片面のPETフィルムを剥がし、ケイ酸カルシウム板(日本テストパネル社製、幅20mm×長さ40mm×厚さ5mm)の長手方向の末端に貼付した後、同じケイ酸カルシウム板で挟み、2Kgの圧着ローラーを300mm/分の速度で2往復させることにより圧着し、更に50℃の恒温室内で168時間放置した。引っ張り速度300mm/分で180℃割裂接着強度を測定した結果をその破壊形態と共に表1に示した。但し単位はKgf/20mm幅である。

【0032】

【表1】

		実施例		比較例	
		1	1	2	
配合組成(重量部)	アルコキシリル基含有架橋性ポリマー(a) MS303	100	100	100	
	2官能性ウレタンアクリレート(b) UA-340P	50	50	—	
	アミノシラン(c) S320	4	—	4	
	光ラジカル重合開始剤(d) ブリソTP	0.4	0.4	0.4	
	光ラジカル重合開始剤(d) ダロキュア-1173	2.6	2.6	2.6	
	錫系触媒(e) SB-65	1	1	1	
	単官能アクリレート(f) ブチルアクリレート	1	1	8	
光重合によるテープ化状況		○	○	×	
剥離接着強度 Kg f/20mm 50℃×168時間(破壊形態)		7.7 (凝聚)	4.8 (界面)	— テープ化× 為評価不可	

【0033】

【発明の効果】本発明に係る光重合性組成物は、多官能

アクリレートを配合するため、光重合直後はに高い凝聚

力を示し、十分な取り扱い性を発現するシートを供し得

る一方、上記2個以上のアルコキシシリル基を有する架橋性ポリマー(a)には実質的に未反応状態のアルコキシシリル基を有するため、被着体に対して十分な濡れを示す。

【0034】又、上記2個以上のアルコキシシリル基を有する架橋性ポリマー(a)を含有した組成物中に、分子中に(メタ)アクリル基を2個以上有する(メタ)アクリルモノマー(b)とアミノ基を有するシランカップリング剤(c)とを含有しているため、光重合や架橋反応過程において、シランカップリング剤によるラジカル重合阻害を実質的に生じることなく、硬化反応が速く進行するので、初期粘着力及び形状保持性に優れているとともに、特にコンクリートやケイ酸カルシウム板等の無機材や木材等に対して十分な接着強度を発現することが可能で、耐水性や耐久性を有する接着剤層を形成し得る。

【0035】本発明に係る湿気硬化型粘接着性シートは、上記光重合性組成物を、光照射することにより重合して得られる、実質的に未反応状態のアルコキシシリル基を有するものであるので、被着体に対して十分な濡れを有するとともに、経時により空気中の湿気等によりシ\*

\* ラノール基を介在した架橋が進行するため、反応速度が速く、特にコンクリートやケイ酸カルシウム板等の無機材や木材等凹凸の表面を有する被着体に対して十分な接着強度を発現することが可能で、耐水性や耐久性を有する接着剤層を形成し得る。

【0036】また、上記湿気硬化型粘接着性シートが、基材上に、実質的に未反応状態のアルコキシシリル基を有する粘接着剤層が形成されてなるものである場合は、上記効果に加えて、形状安定性が高く、巻重体等としての保管が容易である。

【0037】本発明に係る部材の接合方法は、上記湿気硬化型粘接着性シートを被着体に貼り合わせ接合部材を貼り合わせた後、雰囲気中の湿気によって前記湿気硬化型粘接着性シートを硬化させる工程を包含するので、空気中の湿気等によりシラノール基を介在した架橋が速やかに進行するため、コンクリートやケイ酸カルシウム板等の無機材や木材等の被着体に対しても、接合部材がずれたりすることもなく、良好な作業環境下に、十分な接着強度を発現することが可能で、耐水性や耐久性を有する接着剤層を形成し得る。

---

フロントページの続き

(51) Int. Cl.<sup>7</sup>  
C 09 J 133/04  
201/00

識別記号

F I  
C 09 J 133/04  
201/00

コード(参考)

Fターム(参考) 4F071 AA31 AA53 AA67 AC16 AE02  
AE06 AE17 BC01 CB06 CB08  
4F100 AH03H AH06H AK25B AK25J  
AK42 AK51 AK51J AK52B  
AK52K AL05B AL06B AR00B  
AT00A BA02 CA30B EJ67B  
GB90 JB07 JB20 JB20B  
JL00 JL11 JL13B  
4J002 BG001 CK001 CP031 EH096  
EX007 EZ037 FD010 FD147  
FD200 GJ01 GJ02  
4J004 AA01 AA17 AB01 AB07 CA06  
CC02 DB03 FA08  
4J040 ED001 EE021 EL021 FA231  
FA232 FA271 FA272 FA281  
FA282 FA291 FA292 GA02  
GA31 HB19 HD36 JA09 JB04  
JB08 JB09 KA13 KA16 LA06  
LA07 MA01 MA06 MA08 PA32